

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-114573

(43)Date of publication of application : 16.04.2002

(51)Int.Cl.

C04B 35/52

C01B 31/02

C04B 38/00

H01B 1/04

H01B 13/00

(21)Application number : 2000-306734

(71)Applicant : JAPAN SCIENCE & TECHNOLOGY
CORP
NORITAKE CO LTD

(22)Date of filing : 05.10.2000

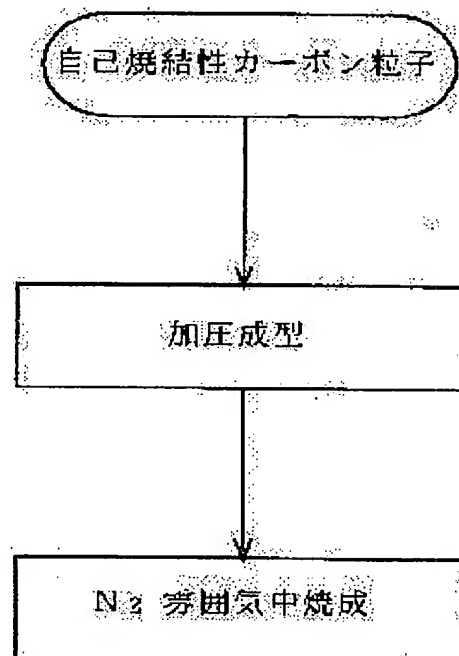
(72)Inventor : YOSHIKAWA HIROSHI

(54) METHOD FOR MANUFACTURING CONDUCTIVE CARBON POROUS BODY AND
CONDUCTIVE CARBON POROUS BODY MANUFACTURED BY THE METHOD

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method to easily manufacture a conductive carbon porous body having a desired pore diameter and porosity and to provide a conductive carbon porous body manufactured by the above method.

SOLUTION: The conductive carbon porous body is obtained by press-forming self-sintering carbon particles in a forming die corresponding to the desired pore diameter and porosity, decreasing the pressure and then calcining.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-114573

(P2002-114573A)

(43)公開日 平成14年4月16日(2002.4.16)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード*(参考)
C 0 4 B 35/52		C 0 1 B 31/02	1 0 1 A 4 G 0 1 9
C 0 1 B 31/02	1 0 1	C 0 4 B 38/00	3 0 4 Z 4 G 0 3 2
C 0 4 B 38/00	3 0 4	H 0 1 B 1/04	4 G 0 4 6
H 0 1 B 1/04		13/00	5 0 1 Z 5 G 3 0 1
13/00	5 0 1	C 0 4 B 35/52	A

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 5 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2000-306734(P2000-306734)

(22)出願日 平成12年10月5日(2000.10.5)

(71)出願人 396020800

科学技術振興事業団

埼玉県川口市本町4丁目1番8号

(71)出願人 000004293

株式会社ノリタケカンパニーリミテド

愛知県名古屋市西区則武新町3丁目1番36号

(72)発明者 吉川 大士

愛知県名古屋市西区則武新町3丁目1番36号
株式会社ノリタケカンパニーリミテド
内

(74)代理人 100082876

弁理士 平山 一幸 (外1名)

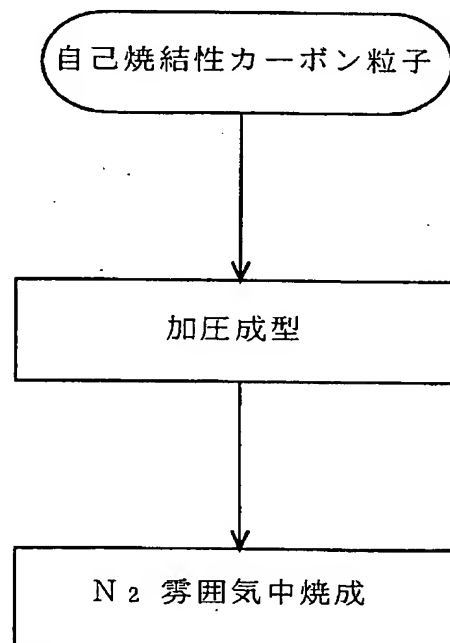
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 導電性カーボン多孔体の作製方法及びその方法で作製した導電性カーボン多孔体

(57)【要約】

【課題】 所望の細孔径及び気孔率を有する導電性カーボン多孔体を容易に作製できる方法及びこの方法で製造した導電性カーボン多孔体を提供する。

【解決手段】 本発明の導電性カーボン多孔体は、自己焼結性カーボン粒子を、所望の細孔径及び気孔率に対応した成型圧で加圧成形後、除圧し、ついで焼成することにより得られる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 自己焼結性カーボン粒子を所定の成型圧で加圧成型後、除圧し、ついで焼成することを特徴とする、導電性カーボン多孔体の作製方法。

【請求項2】 前記所定の成型圧を選択することにより、所定の細孔径と気孔率を有する導電性カーボン多孔体を得ることを特徴とする、請求項1に記載の導電性カーボン多孔体の作製方法。

【請求項3】 前記焼成は、窒素雰囲気中で、600～1500℃でおこなうことを特徴とする、請求項1に記載の導電性カーボン多孔体の作製方法。

【請求項4】 前記所定の成型圧が60kg/cm²～320kg/cm²の範囲において、前記所定の細孔径が0.6μm～0.32μmの範囲で変化することを特徴とする、請求項1に記載の導電性カーボン多孔体の作製方法。

【請求項5】 前記所定の成型圧が60kg/cm²～320kg/cm²の範囲において、前記所定の気孔率が43%～28.4%の範囲で変化することを特徴とする、請求項1に記載の導電性カーボン多孔体の作製方法。

【請求項6】 請求項1に記載の作製方法で作製した、導電性カーボン多孔体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、燃料電池の電極等に用いる導電性カーボン多孔体の作製方法と、その方法で作製した導電性カーボン多孔体に関する。

【0002】

【従来の技術】 増え続けるエネルギー消費にともない、炭酸ガス排出量が増え続け、急激な地球温暖化をもたらしている。炭酸ガス排出を伴わずに、かつ高効率で電気エネルギーを取り出すことのできる燃料電池技術は、21世紀の究極のエネルギー技術の一つとして、世界中でその研究開発が行われている。燃料電池は、水素と酸素が化学反応し水を生成する過程の化学エネルギーを電気エネルギーとして取り出すものであり、炭酸ガスの排出を伴わずに電気エネルギーを得ることができる。燃料電池は、図6に示すように、燃料極、空気極と呼ばれる電極の間に、電解質またはイオン交換膜を挟んだ構造を有している。燃料極において、燃料から供給される水素を電解質またはイオン交換膜にイオンとして供給し、この際の電極反応により燃料極に電子を取り込み、この電子は、水素イオンが空気極に到達し酸素と反応する際に消費される。こうして、燃料極と空気極の化学ポテンシャル差に基づく起電力と水素イオンの供給量によって定まる電力が得られる。

【0003】 このように、燃料極及び空気極は、電気導体であると共に燃料及び空気の供給体であることが必要である。燃料電池の出力電力密度を高めるためには、電

極反応速度を高めることが必要であり、このため触媒を使用し、さらに、高温で動作させる。そのため、燃料極及び空気極は、電気の良い導体、燃料及び空気の通気性、電解質に対する耐腐食性のみならず、耐熱性があることが必要であり、これらの要件を全て満たす電極として導電性カーボン多孔体が用いられている。導電性カーボン多孔体の燃料及び空気に対する通気性は、導電性カーボンに細孔を設け、細孔の直径と細孔の密度、すなわち気孔率で制御する。細孔の直径は十分な通気性を確保できると共に、電解質またはイオン交換膜と電極との界面で起こる電極反応に最適な径が必要であり、使用する触媒、使用する電解質またはイオン交換膜の種類に応じて、最適な径に作製しなければならない。上記説明では、燃料電池を例として説明したが、導電性カーボン多孔体は、燃料電池の電極への応用のみならず、導電性、通気性、耐薬品性及び機械的強度を必要とするその他の化学プラントにとっても重要部品である。

【0004】 従来、このような最適な細孔径及び気孔率を有する導電性カーボン多孔体は、最適な細孔径に対応した径を有する炭素繊維あるいは有機繊維を適量、バインダーに混合して成形し、炭素化焼成して作製していた（特開平10-036179号、特開平06-263558号並びに特開平06-263559号の各公報を参照）。これらの方法は、細孔径を炭素繊維あるいは有機繊維の径によって、さらに、気孔率を炭素繊維あるいは有機繊維の混合する量によって制御するものである。

【0005】 しかしながら、このような従来法では、最適な細孔径に対応した径の炭素繊維あるいは有機繊維を準備し、細孔径及び気孔率に対応してバインダーの種類及び量を厳密に調整し、かつ炭素化焼成においても細孔径及び気孔率に対応した焼成条件を精密に制御して作製しなければ、所望の細孔径及び気孔率を有し、かつ、機械的強度及び導電性も十分なカーボン多孔体を得られなかった。このため、導電性カーボン多孔体のコストが高かったと言った課題がある。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、上記課題にかんがみ、所望の細孔径及び気孔率を有する導電性カーボン多孔体を容易に作製できる方法及びこの方法で製造した導電性カーボン多孔体を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】 上記課題を達成するために本発明の導電性カーボン多孔体の作製方法は、自己焼結性カーボン粒子を所定の成型圧で加圧成型後、除圧し、ついで焼成することを特徴とする。上記構成において、所定の成型圧を選択することにより、所定の細孔径と気孔率を有する導電性カーボン多孔体を得ることを特徴とする。また、上記焼成は、窒素雰囲気中で、600～1500℃でおこなうことを特徴とする。また、上記

3

所定の成型圧が $60 \text{ kg/cm}^2 \sim 320 \text{ kg/cm}^2$ の範囲において、所定の細孔径が $0.6 \mu\text{m} \sim 0.32 \mu\text{m}$ の範囲で変化することを特徴とする。また、上記所定の成型圧が $60 \text{ kg/cm}^2 \sim 320 \text{ kg/cm}^2$ の範囲において、所定の気孔率が $43\% \sim 28.4\%$ の範囲で変化することを特徴とする。この構成によれば、導電性を有し、かつ用途に応じた細孔径及び気孔率を有する導電性カーボン多孔体を容易に作製できる。従って、本発明の作製方法による導電性カーボン多孔体は、コストが低く、従って低価格で提供することができる。

【0008】

【発明の実施の形態】自己焼結性カーボン粒子とは、重質油等を加熱処理して得られる、メソフェーズと呼ばれるカーボンの液晶状の物質を仮焼処理したものである。自己焼結性カーボン粒子の表面には、 $-\text{COOH}$ 、 $-\text{SO}_3$ 等の官能基成分が存在し、これらの成分が、加圧成型時に型を保持するバインダーの役割を果たし、また、焼成時にはこれらの成分が溶融し、隣の粒子と結合及び炭化することによって粒子同士の結合力が生じる。このように、自己焼結性カーボン粒子は、それ自身で優れた自己焼結性を有しており、バインダーを使用することなく、自己焼結性カーボン粒子をそのまま加圧成型及び焼成することによって、高密度、かつ高曲げ強度を有する炭素成型品を得ることができる。本発明は、自己焼結性カーボン粒子を加圧成型する際に、成型圧を適宜選択することにより、自己焼結性カーボン粒子間の空隙の大きさ、及び空隙の密度を制御し、所望の細孔径と気孔率を有する導電性カーボン多孔体を得るものである。図1は、本発明の導電性カーボン多孔体の作製方法を示す模式図である。図1に示すように、本発明の作製方法は、加圧成型と、窒素雰囲気中焼成の二つの工程のみで構成される。

【0009】以下に実施例を示す。図2は本発明の作製方法による導電性カーボン多孔体の細孔径と成型圧の関係を示すグラフである。図3は本発明の作製方法による導電性カーボン多孔体の気孔率と成型圧の関係を示すグラフである。本実施例に用いた導電性カーボン多孔体は、(1)自己焼結性カーボン原料粉(粒径 $5 \mu\text{m}$)をステンレス製型に入れ、(2)1分間、一定の成型圧で加圧して成型し、(3)成型圧を零にしたまま N_2 雰囲気中で、 1000°C から $2^\circ\text{C}/\text{min}$ の割合で昇温して 1000°C にし、 1000°C で2時間保持することにより作製した。得られた導電性カーボン多孔体の細孔径及び気孔率は、水銀圧入法で測定した。加圧成型する際の自

4

己焼結性カーボン粒子の量は、成型体が 2 mm 厚程度になるように調整した。

【0010】図2に見られるように、成型圧が $60 \text{ kg/cm}^2 \sim 320 \text{ kg/cm}^2$ の範囲において、成型圧を大きくするに従って、細孔径が小さくなり、 $0.6 \mu\text{m} \sim 0.32 \mu\text{m}$ の範囲で変化する。なお、図中の縦バーは誤差範囲を示す。図3に見られるように、成型圧が $60 \text{ kg/cm}^2 \sim 320 \text{ kg/cm}^2$ の範囲において、成型圧を大きくするに従って、気孔率が減少し、 $43\% \sim 28.4\%$ の範囲で変化する。なお、図中の縦バーは誤差範囲を示す。また、4探針測定法で測定した、導電性カーボン多孔体の比抵抗は、 $2.4 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$ であった。

【0011】図4は、成型圧 135 kg/cm^2 で作製した導電性カーボン多孔体の厚さ (2 mm) 方向の断面の電子顕微鏡写真である。図5は、上記導電性カーボン多孔体の表面の電子顕微鏡写真である。図4及び図5から明らかなように、本発明の導電性カーボン多孔体は、自己焼結性カーボン粒子が互いに空隙を有しながら結合し、この空隙が均一に分布している。

【0012】

【発明の効果】上記説明から理解されるように、本発明の作製方法によれば、成型時の成型圧を選択することにより、所望の細孔径を有する導電性カーボン多孔体を得ることができる。また、成型時の成型圧を選択することにより、所望の気孔率を有する導電性カーボン多孔体を得ることができる。従って、所望の細孔径及び気孔率を有する導電性カーボン多孔体を容易に得ることができ、また、この製造方法で製造した導電性カーボン多孔体は低コストである。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の導電性カーボン多孔体の作製方法を示す模式図である。

【図2】この発明の作製方法による導電性カーボン多孔体の細孔径と成型圧の関係を示すグラフである。

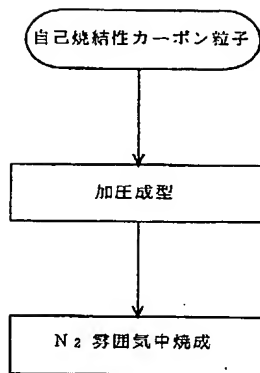
【図3】この発明の作製方法による導電性カーボン多孔体の気孔率と成型圧の関係を示すグラフである。

【図4】この発明の作製方法による導電性カーボン多孔体の厚さ (2 mm) 方向の断面の電子顕微鏡写真である。

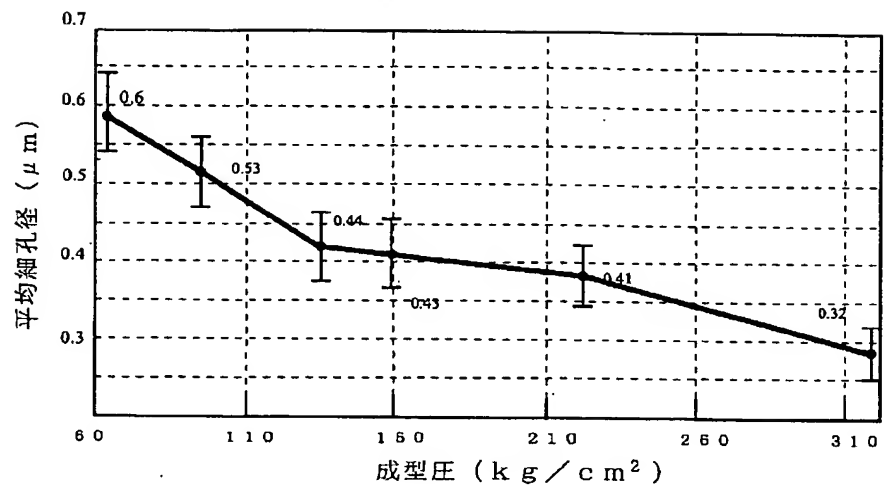
【図5】この発明の作製方法による導電性カーボン多孔体の表面の電子顕微鏡写真である。

【図6】燃料電池の構造である。

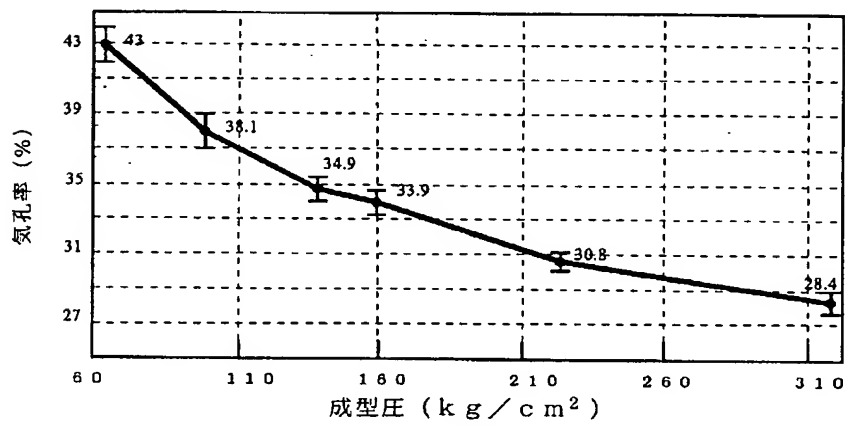
【図1】



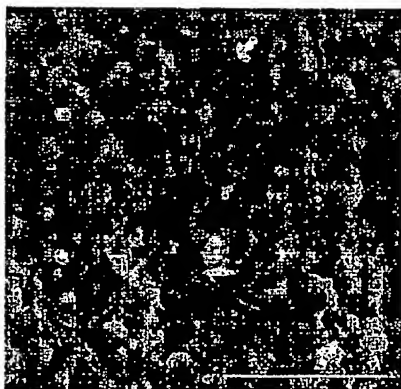
【図2】



【図3】



【図4】

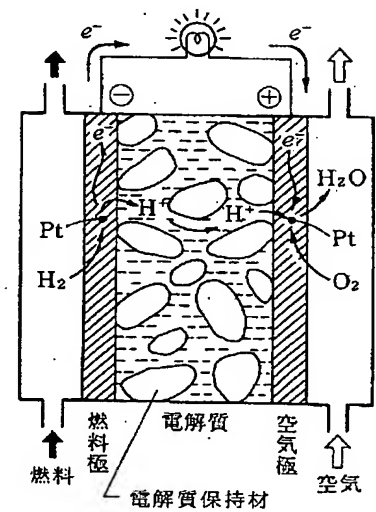


50 μm

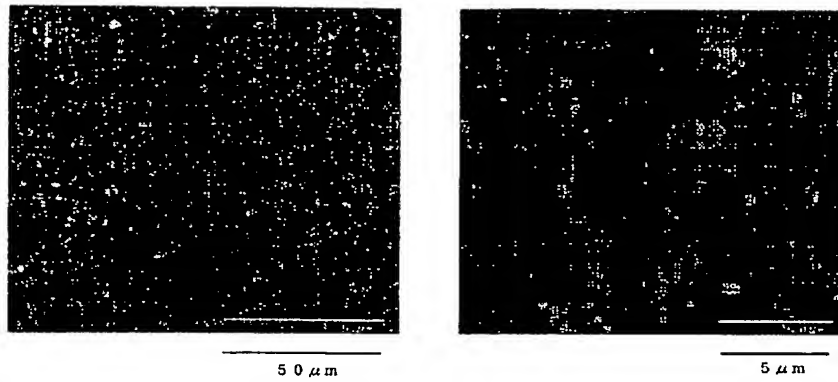


5 μm

【図6】



【図5】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁷

識別記号

F I
C 0 4 B 35/52

ターマコード(参考)

F

F ターム(参考) 4G019 GA04
 4G032 AA08 BA05 GA06 GA12
 4G046 CB05 CB09 CC02 CC03
 5G301 BA01 BE01